

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-256193

(P2002-256193A)

(43) 公開日 平成14年9月11日 (2002.9.11)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード* (参考)
C 0 9 D 11/00		C 0 9 D 11/00	2 C 0 5 6
B 4 1 J 2/01		B 4 1 M 5/00	E 2 H 0 8 6
B 4 1 M 5/00		C 0 9 B 5/48	4 J 0 3 9
// C 0 9 B 5/48		B 4 1 J 3/04	1 0 1 Y

審査請求 未請求 請求項の数15 O L (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願2001-398534 (P2001-398534)

(22) 出願日 平成13年12月27日 (2001. 12. 27)

(31) 優先権主張番号 特願2000-403299 (P2000-403299)

(32) 優先日 平成12年12月28日 (2000. 12. 28)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000002369

セイコーエプソン株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目4番1号

(72) 発明者 佐野 強

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコーエプソン株式会社内

(72) 発明者 竹本 清彦

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコーエプソン株式会社内

(74) 代理人 100095728

弁理士 上柳 雅彦 (外2名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ブラックインク組成物、インクセット、記録方法、記録物、及びインクジェット記録装置

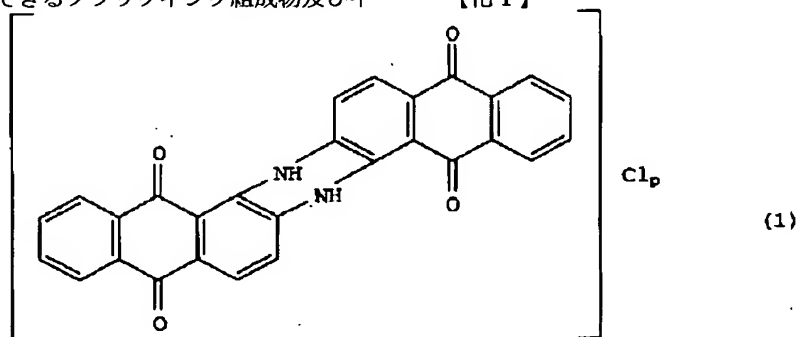
(57) 【要約】

【課題】 経時的にも安定してカーボンブラックの帯黄性を修正することができるブラックインク組成物及びイ

ンクセットを提供する。

【解決手段】 ブラックインク組成物は、式 (1) :

【化1】

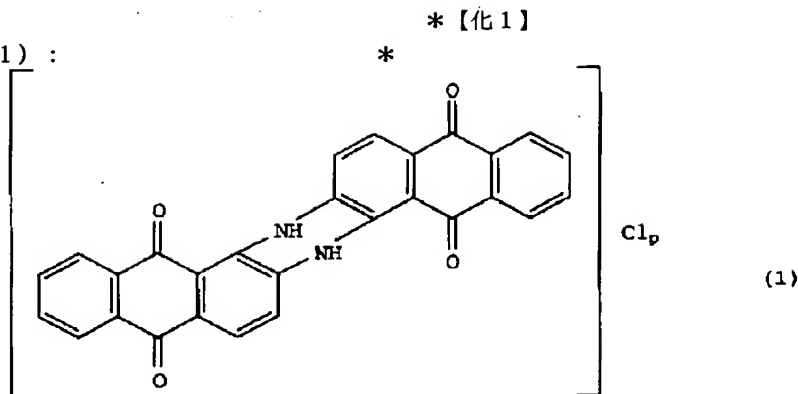


(式中、pは0~3の整数である) で表される顔料とカーボンブラックとを含む。インクセットは、前記ブラッ

クインク組成物を含む。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 式(1)：



(式中、pは0～3の整数である)で表される顔料とカーボンブラックとを含むことを特徴とする、ブラックインク組成物。

【請求項2】 水系である請求項1に記載のブラックインク組成物。

【請求項3】 アニオン性界面活性剤、ノニオン性界面活性剤、及び両性界面活性剤からなる群から選んだ界面活性剤少なくとも1種を含む請求項1又は2に記載のブラックインク組成物。

【請求項4】 前記のノニオン性界面活性剤がアレチレングリコール系界面活性剤である請求項3に記載のブラ※

※ックインク組成物。

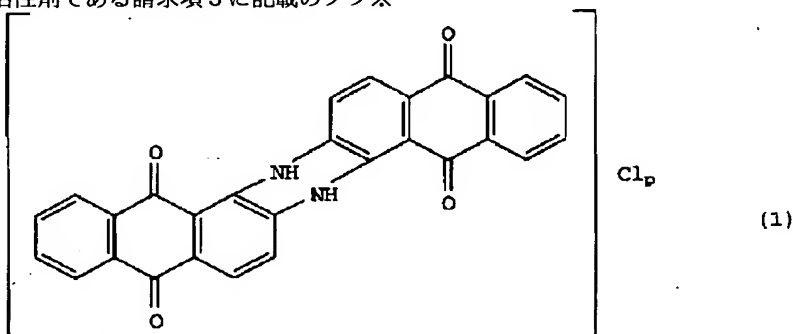
【請求項5】 水溶性有機溶媒を更に含有する請求項1～4のいずれか一項に記載のブラックインク組成物。

【請求項6】 インクジェット記録用である請求項1～5のいずれか一項に記載のブラックインク組成物。

【請求項7】 式(1)で表される顔料とカーボンブラックとを含む組成物がライトブラックインク組成物である、請求項6に記載のインクセット。

【請求項8】 式(1)：

【化2】



(式中、pは0～3の整数である)で表される顔料とカーボンブラックとを含むブラックインク組成物を含むことを特徴とする、インクセット。

【請求項9】 カーボンブラック濃度が異なる複数のブラックインク組成物を含むインクセットであって、そのインクセットに含まれる任意の2種のブラックインク組成物を比較した場合に、カーボンブラック濃度が低い方のブラックインク組成物におけるカーボンブラック濃度(K1)に対する式(1)で表される顔料濃度(P1)の比(P1/K1)と、カーボンブラック濃度が高い方のブラックインク組成物におけるカーボンブラック濃度(K2)に対する式(1)で表される顔料濃度(P2)の比(P2/K2)が、以下の関係式(2)：

$$P1/K1 > P2/K2 \quad (2)$$

を満足することを特徴とする、請求項8に記載のインク

セット。

【請求項10】 式(1)で表される顔料とカーボンブラックとを含む組成物が、ライトブラックインク組成物及びブラックインク組成物である、請求項9に記載のインクセット。

【請求項11】 水系である請求項8～10のいずれか一項に記載のインクセット。

【請求項12】 インクジェット記録用である請求項8～11のいずれか一項に記載のインクセット。

【請求項13】 インク組成物の液滴を吐出して、前記液滴を記録媒体に付着させて印刷を行う記録方法であって、請求項1～6のいずれか一項に記載のブラックインク組成物、又は請求項7～12のいずれか一項に記載のインクセットを用いることを特徴とする記録方法。

【請求項14】 請求項13に記載の記録方法によって

印刷されたことを特徴とする記録物。

【請求項15】 電気信号に基づいて振動可能な電歪素子が搭載されるとともに、前記電歪素子の振動によって、請求項1～6のいずれか一項に記載のブラックインク組成物、又は請求項7～12のいずれか一項に記載のインクセットを吐出することができるように構成されたことを特徴とするインクジェット記録装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ブラックインク組成物、インクセット、並びにそれらを用いる記録方法、記録物、及びインクジェット記録装置に関する。

【0002】

【従来の技術】インクジェット記録方法等によって画像を形成する場合に、高品質の画像を得る目的で、ライトブラックインクを含むインクセットを用いることがある。例えば、ブラックインク、シアンインク、マゼンタインク及びイエローインクからなる4色インクセット（あるいは、それらにライトシアンインク及びライトマゼンタインクを追加した6色インクセット）に、更にライトブラックインクを加えて5色インクセット（あるいは、7色インクセット）とすることがある。ライトブラックインクとは、ブラックインクよりもそのカーボンブラック濃度を低くしたものであり、シャドウ部等の暗色に対する色再現性やグレーの階調性を向上させる目的で使用する。

【0003】しかしながら、ライトブラックインク（すなわち、薄いブラックインク）は、顔料含有量が低いので、得られる色相が、本来必要とする無彩色ではなく、色味を帯びてしまう。すなわち、 $L^*a^*b^*$ 空間で、 $(a^*, b^*) = (0, 0)$  から逸脱し、具体的には黄色味を帯びてしまう。カーボンブラックのこうした帯黄性を修正するには、イエローの補色となる着色剤（すなわち、顔料）を使用する必要がある。イエローの補色となる顔料を有機顔料から選択する場合には、空気酸化による変色や耐光性を考慮する必要がある。

【0004】例えば、米国特許第5,803,958号明細書には、カーボンブラックに加えてシアン顔料とマゼンタ顔料とを含むブラック顔料インク組成物が記載されている。前記米国特許明細書には、具体的にシアン顔

料としてピグメントブルー15:3を含み、マゼンタ顔料としてピグメントレッド122を含むブラック顔料インク組成物が記載されており、このブラック顔料インク組成物をライトブラックインク組成物として用いると、前記の帯黄性が改善される。しかしながら、前記のピグメントブルー15:3及びピグメントレッド122は、経時的には、かえって帯黄性が強調されてしまうということがあった。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明者は、ライトブラックインク組成物における従来技術の欠点を経時的にも安定して解消し、カーボンブラックの帯黄性を修正することができる手段を鋭意研究していたところ、特定のブルー顔料を補色として使用すると、色味が良好で、耐光性に優れ、更に空気酸化による変色にも耐えることのできるブラック顔料インク組成物を得ることができることを見出した。このブラック顔料インク組成物は、ライトブラックインクとしての使用の際に、従来技術の欠点を経時的にも安定して解消することができるだけでなく、通常のブラックインク（カーボンブラック濃度の高いインク）にも好適に適用することができる。

【0006】更に、本発明者は、複数のライトブラックインク組成物を含むインクセットにおいて、そのインクセットに含まれる任意の2種のブラックインク組成物を比較した場合に、カーボンブラック濃度が低い方のブラックインク組成物（例えば、ライトブラックインク組成物）におけるカーボンブラック濃度に対する前記特定ブルー顔料の濃度の比を、カーボンブラック濃度が高い方のブラックインク組成物（例えば、ブラックインク組成物）におけるカーボンブラック濃度に対する前記特定ブルー顔料の濃度の比よりも高くすることにより、例えば、経時的にも安定に帯黄性を修正したグレースケールを作成することが可能になることも見出した。

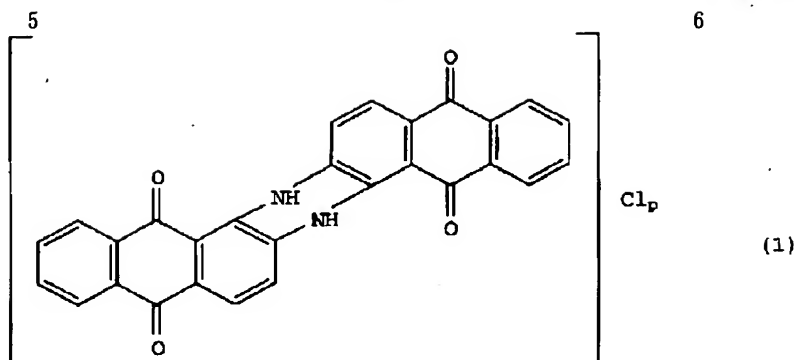
【0007】本発明はこうした知見に基づくものである。

【0008】

【課題を解決するための手段】従って、本発明は、式(1)：

【0009】

【化3】



(式中、pは0～3の整数である)で表される顔料とカーボンブラックとを含むことを特徴とする、ブラックインク組成物に関する。

【0010】また、本発明は、前記式(1)で表される顔料とカーボンブラックとを含むブラックインク組成物を含むことを特徴とする、インクセットにも関する。

【0011】

【発明の実施の形態】本発明によるブラックインク組成物が含有する前記式(1)で表される顔料は、ブルー顔料であり、その内、p=0の場合の化合物は、カラーインデックス・ピグメントブルー60(C. I. PB 60)として知られている。

【0012】また、本発明のブラックインク組成物では、カーボンブラックとして、例えば、コンタクト法、ファーネスト法、又はサーマル法などの公知の方法によって製造されたカーボンブラックを使用することができる。カーボンブラックとしては、具体的には、三菱化学製のNo. 2300, No. 900, MCF88, No. 33, No. 40, No. 45, No. 52, MA7, MA8, MA100, No2200B等; コロンビア社製のRaven5750, Raven5250, Raven5000, Raven3500, Raven1255, Raven700等; キャボット社製のRegal 400R, Regal 330R, Regal 660R, Mogul L, Monarch 700, Monarch 800, Monarch 880, Monarch 900, Monarch 1000, Monarch 1100, Monarch 1300, Monarch 1400等; デグッサ社製のColor Black FW1, Color Black FW2, Color Black FW2V, Color Black FW18, Color Black FW200, Color Black S150, Color Black S160, Color Black S170, Printex 35, Printex U, Printex V, Printex 140U, Special Black 6, Special Black 5, Special Black 4A, Special Black 4等を使用することができる。

【0013】本発明のブラックインク組成物に含有されるカーボンブラックと前記式(1)で表されるブルー顔料(特にC. I. PB 60)との量比は特に限定されず、使用する個々のカーボンブラックの帯黄性を修正することのできる量で前記ブルー顔料を含有させればよい。具体的に含有量を決定するには、例えば、使用するカーボンブラックと前記ブルー顔料とを特定比率で含有するインク組成物によって形成される記録像について、一般的には、オゾン環境への暴露に対する色の変化率を測定して記録像の帯黄性を評価し、その帯黄性を適切に修正することのできる両者の含有比率を調整する。

【0014】本発明のブラックインク組成物は、前記ブルー顔料(特にC. I. PB 60)を含有することを除けば、それ以外の点では、従来公知のブラックインク組成物と同様の配合成分を含むことができ、有機系インク又は好ましくは水系インクとして調製することができる。また、従来公知の各種の記録方法用インクとして利用することができ、好ましくはインクジェット記録用インクとして利用することができる。

【0015】以下に、本発明のブラックインク組成物がインクジェット記録用の水系インク組成物である場合について簡単に説明する。

【0016】本発明によるインクジェット記録用水系ブラックインク組成物において、カーボンブラック及び前記ブルー顔料(特にC. I. PB 60)は、例えば、分散剤で水性媒体中に分散させた顔料分散液としてインク組成物に添加するのが好ましい。

【0017】本発明のインクジェット記録用水系ブラックインク組成物において、カーボンブラックは、インク組成物の全重量に対して好ましくは1～10重量部、より好ましくは1.5～5重量部の量で含有される。また、前記ブルー顔料(特にC. I. PB 60)は、前記カーボンブラック1重量部当たり、好ましくは0.05～1.5重量部、より好ましくは0.1～1重量部の量で含有される。前記ブルー顔料の含有量がカーボンブラック1重量部当たり0.05重量部未満になると、淡黒色記録部に黄色味が目立つようになり、カーボンブラック1重量部当たり1.5重量部を越えると、特に濃黒色記録部及び淡黒色記録部で青色味が強くなり過ぎるので

好ましくない。

【0018】カーボンブラックの粒径は、 $10\mu\text{m}$ 以下が好ましく、更に好ましくは $0.1\mu\text{m}$ 以下である。同様に、C. I. PB60の粒径は、 $10\mu\text{m}$ 以下が好ましく、更に好ましくは $0.1\mu\text{m}$ 以下である。

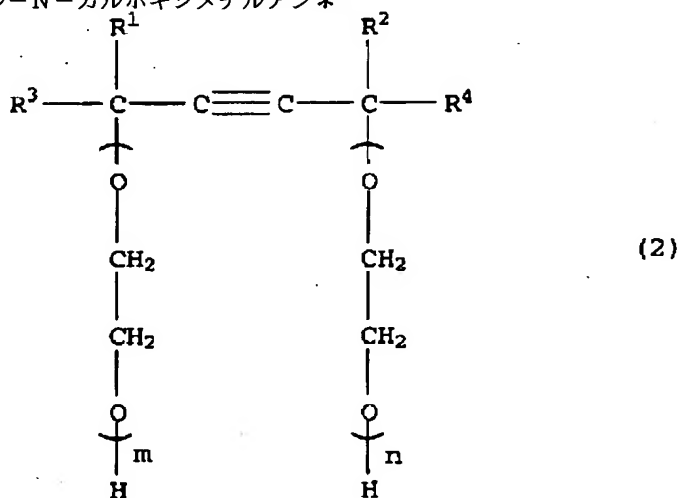
【0019】本発明のインクジェット記録用水系ブラックインク組成物は、更に界面活性剤を含有することができる。界面活性剤の具体例としては、アニオン性界面活性剤（例えば、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム、ラウリル酸ナトリウム、又はポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェートのアンモニウム塩など）、ノニオン性界面活性剤（例えば、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアミン、又はポリオキシエチレンアルキルアミドなど）、両性界面活性剤（例えば、N, N-ジメチル-N-アルキル-N-カルボキシメチルアン\*

\*モニウムベタイン、N, N-ジアルキルアミノアルキレンカルボン酸塩、N, N, N-トリアルキル-N-スルホアルキレンアンモニウムベタイン、N, N-ジアルキル-N, N-ビスポリオキシエチレンアンモニウム硫酸エステルベタイン、又は2-アルキル-1-カルボキシメチル-1-ヒドロキシエチルイミダゾリニウムベタイン）等を挙げることができ、これらは単独で又は二種以上を組合せて使用することができる。

【0020】本発明のブラックインク組成物は、アセチレングリコール系界面活性剤を含むのが好ましい。この添加によってインク組成物の記録媒体への浸透性を向上することができ、種々の記録媒体においてにじみの少ない印刷を期待することができる。本発明のブラックインク組成物において用いられるアセチレングリコール系界面活性剤の好ましい具体例としては、一般式(2)：

【0021】

【化4】



〔式中、 $0 \leq m+n \leq 50$ であり、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$ 、及び $\text{R}^4$ はそれぞれ独立してアルキル基、好ましくは炭素数6以下のアルキル基である〕で表わされる化合物を挙げることができる。

【0022】前記一般式(2)で表される化合物の中で、特に好ましくは2, 4, 7, 9-テトラメチル-5-デシン-4, 7-ジオール、3, 6-ジメチル-4-オクテン-3, 6-ジオール、3, 5-ジメチル-1-ヘキシン-3オールなどを挙げることができる。前記一般式(2)で表されるアセチレングリコール系界面活性剤として市販品を利用することも可能であり、その具体例としてはサーフィノール104、82、465、485、又はTG（いずれもAir Products and Chemicals, Inc. より入手可能）、オルフィンSTG、オルフィンE1010（いずれも日信化学社製の商品名）を挙げることができる。

【0023】本発明のインクジェット記録用水系ブラックインク組成物に含有される界面活性剤量は特に限定されるものではないが、好ましくは0.01~10重量%、より好ましくは0.1~5重量%の範囲である。界面活性剤の含有量が0.01重量%未満になると界面活性効果が十分に得られず、10重量%を超えると結晶の析出、液晶の形成、あるいは顔料の安定性低下などによる吐出不良の原因となる場合が認められる。

【0024】本発明において、顔料は、顔料を分散させる分散剤によりインク組成物中に分散されるものである。

【0025】本発明の好ましい態様によれば、これらの顔料は、分散剤で水性媒体中に分散させて得られた顔料分散液としてインク組成面に添加されるのが好ましい。

【0026】本発明における分散剤としては、慣用の界面活性剤の他、顔料分散液を調製するのに慣用されてい

る分散剤、例えば高分子分散剤を好適に使用することができる。なお、この顔料分散液に含まれる分散剤がインク組成物の分散剤及び界面活性剤としても機能するであろうことは当業者に明らかであろう。

【0027】より好ましい分散剤としては、高分子分散剤、特に樹脂分散剤を使用することができる。

【0028】高分子分散剤の好ましい例としては天然高分子が挙げられる。その具体例としては、にかわ、セラチン、ガゼイン、又はアルブミンなどのタンパク質類、アラビアゴム、又はトラガントゴムなどの天然ゴム類、サポニンなどのグルコシド類、アルギン酸、あるいはアルギン酸プロピレングリコールエステル、アルギン酸トリエタノールアミン、又はアルギン酸アンモニウムなどのアルギン酸誘導体、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、又はエチルヒドロキシセルロースなどのセルロース誘導体などが挙げられる。

【0029】また、高分子分散剤の好ましい例としては合成高分子も挙げられる。その具体例としては、ポリビニルアルコール類、ポリビニルピロリドン類、ポリアクリル酸、アクリル酸-アクリルニトリル共重合体、アクリル酸塩-アクリルニトリル共重合体、酢酸ビニル-アクリル酸エステル共重合体、又はアクリル酸-アクリル酸エステル共重合体などのアクリル系樹脂、スチレン-アクリル酸共重合体、スチレン-メタクリル酸共重合体、スチレン-メタクリル酸-アクリル酸エステル共重合体、スチレン- $\alpha$ -メチルスチレン-アクリル酸共重合体、又はスチレン- $\alpha$ -メチルスチレン-アクリル酸-アクリル酸エステル共重合体などのスチレン-アクリル樹脂、スチレン-マレイン酸共重合体、スチレン-無水マレイン酸共重合体、イソブチレン-マレイン酸樹脂、ロジン変性マレイン酸樹脂、ビニルナフタレン-アクリル酸共重合体、ビニルナフタレン-マレイン酸共重合体、あるいは、酢酸ビニル-エチレン共重合体、酢酸ビニル-脂肪酸ビニルエチレン共重合体、酢酸ビニル-マレイン酸エステル共重合体、酢酸ビニル-クロトン酸共重合体、又は酢酸ビニル-アクリル酸共重合体などの酢酸ビニル系共重合体及びそれらの塩が挙げられる。

【0030】これらの中でも、スチレン-アクリル酸共重合体、スチレン-メタクリル酸共重合体、アクリル酸-アクリル酸エステル共重合体、及びスチレン-無水マレイン酸共重合体が該分散剤として好ましい。

【0031】また、樹脂分散剤としては、市販のものを使用することができ、その具体例としては、ジョンソンポリマー株式会社製、ジョンクリル68（分子量10000、酸価195）、ジョンクリル61J（分子量10000、酸価195）、ジョンクリル680（分子量3900、酸価215）、ジョンクリル682（分子量1600、酸価235）、ジョンクリル550（分子量7500、酸価200）、ジョンクリル555（分子量5

000、酸価200）、ジョンクリル586（分子量3100、酸価105）、ジョンクリル683（分子量7300、酸価150）、ジョンクリルB-36（分子量6800、酸価250）等が挙げられる。

【0032】本発明のインクジェット記録用水系ブラックインク組成物は、湿潤剤、乾燥速度調整剤、及び/又は安定化剤として、水溶性有機溶媒を含有することができる。各インク組成物に添加される水溶性有機溶媒の含有量は、インク組成物の全重量に対して、好ましくは0.5~40重量%程度であり、より好ましくは2~30重量%である。

【0033】前記の水溶性有機溶媒としては、通常の水溶性顔料インク組成物に配合される水溶性有機溶媒を用いることができ、具体的には、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、ブチレングリコール、1,2,6-ヘキサントリオール、チオグリコール、ヘキシレングリコール、グリセリン、トリメチロールエタン、若しくはトリメチロールプロパンなどの多価アルコール類；エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールモノブチルエーテル、トリエチレングリコールモノメチルエーテル、トリエチレングリコールモノエチルエーテル、若しくはトリエチレングリコールモノブチルエーテルなどの多価アルコールのアルキルエーテル類；あるいは、2-ピロリドン、N-メチル-2-ピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、又はトリエタノールアミンを挙げることができる。

【0034】また、本発明のブラックインク組成物は、防腐剤、金属イオン捕獲剤、及び/又は防錆剤を更に含有するのが好ましい。ここで、防腐剤は、アルキルイソチアゾロン、クロルアルキルイソチアゾロン、ベンズイソチアゾロン、プロモニトロアルコール、オキサゾリジン系化合物、及びクロルキシレノールからなる群から選択された1種以上の化合物が好ましく、金属イオン捕獲剤は、エチレンジアミン四酢酸塩が好ましく、防錆剤は、ジシクロヘキシルアンモニウムニトラート及び/又はベンゾトリアゾールが好ましく用いられる。

【0035】また、本発明におけるブラックインク組成物は、保存安定性の確保、目詰まり防止、吐出安定の確保、放置安定性の確保の目的で、湿潤剤、保湿剤、溶解助剤、浸透制御剤、粘度調整剤、pH調整剤、溶解助剤、酸化防止剤、防霉剤、腐食防止剤、その他の種々の添加剤を添加することができる。

【0036】その他、インク成分の溶解性を向上させ、更に記録媒体、例えば、紙に対する浸透性を向上させ、

10

20

30

40

50

あるいはノズルの目詰まりを防止する成分として、エタノール、メタノール、ブタノール、プロパノール、又はイソプロパノールなどの炭素数1~4のアルキルアルコール類、ホルムアミド、アセトアミド、ジメチルスルホキシド、ソルビット、ソルビタン、アセチン、ジアセチン、トリアセチン、スルホランなどを挙げることができる。これらを適宜選択して使用することができる。

【0037】また、pH調整剤、ジエタノールアミン、トリエタノールアミン、プロパノールアミン、モルホリンなどのアミン類及びそれらの変成物、水酸化カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化リチウムなどの無機水酸化物、水酸化アンモニウム、4級アンモニウム塩（テトラメチルアンモニウムなど）、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸リチウムなどの炭酸塩類、その他、磷酸塩などを挙げることができる。

【0038】その他の添加剤として、尿素、チオ尿素、テトラメチル尿素などの尿素類、アロハネート、メチルアロハネートなどのアロハネート類、ピウレット、ジメチルピウレット、テトラメチルピウレットなどのピウレット類など、L-アスコルビン酸及びその塩、市販の酸化防止剤、紫外線吸収剤なども用いることができる。

【0039】また、本発明のブラックインク組成物は、表面張力が45mN/m以下であることが好ましく、更に好ましくは、25~45mN/mの範囲である。表面張力が45mN/mを越えると、印字の乾燥性が悪くなり、滲みが発生しやすくなり、カラーブリードが発生する等のため、良好な印刷画像が得られにくい。また、表面張力が25mN/m未満では、プリンタヘッドのノズル周囲が濡れやすくなるためにインク滴の飛行曲がり角が発生する等、吐出安定性に問題が生じ易い。上記表面張力は、通常に用いられる表面張力計によって測定することができる。

【0040】インクの表面張力は、インクを構成する各成分の種類や組成比などを調整することにより上記範囲内とすることができる。

【0041】本発明のインクジェット記録用水系ブラックインク組成物は、通常の方法で調製することができる。

【0042】本発明のブラックインク組成物は、インクセットにおいて、有利に用いることができ、本発明はインクセットにも関する。

【0043】本発明のインクセットは、モノクロ記録用のインクセット又はカラー記録用のインクセットであることができる。

【0044】本発明のモノクロ記録用インクセットは、ブラックインクと、ライトブラックインク少なくとも1種とを含み、ブラックインクか、ライトブラックインクの少なくとも1種として、本発明による前記のブラックインク組成物を用いる。

【0045】また、本発明のカラー記録用インクセット

を構成するインク組成物の種類や数は、本発明のブラックインク組成物をインクセット構成員として含む限り特に限定されるものではないが、典型的な本発明によるインクセットとしては、例えば、イエロー、シアン、マゼンタ、及びブラックの4色のインクセット；イエロー、シアン、マゼンタ、ブラック、ライトシアン、及びライトマゼンタの6色のインクセット；イエロー、シアン、マゼンタ、ブラック、ライトシアン、ライトマゼンタ、及びダークイエローの7色のインクセット；イエロー、マゼンタ、シアン、ブラック、ライトブラック、ライトマゼンタ、及びライトシアンの7色のインクセット；イエロー、シアン、マゼンタ、ブラック、レッド、グリーン、及びブルーの7色のインクセット；イエロー、シアン、マゼンタ、ブラック、オレンジ、グリーン、及びブルーの7色のインクセット；並びにイエロー、マゼンタ、シアン、ブラック、オレンジ、グリーン、及びバイオレットの7色のインクセット；を挙げることができる。

【0046】なお、本明細書において「ライトブラック」インク組成物とは、シャドウ部等の暗色に対する色再現性の向上及びグレーの階調性を向上させ、粒状性の低下を目的に、ブラックインク組成物の顔料（すなわち、カーボンブラック）濃度を低くしたものである。また、「ライトマゼンタ」及び「ライトシアン」の各インク組成物とは、一般的には、濃度変調による印刷画像の画質向上を目的に、それぞれマゼンタインク組成物、及びシアンインク組成物の色材濃度を低くしたインク組成物である。また、「ダークイエロー」のインク組成物とは、シャドウ部等の暗色に対する色再現性を向上させる目的で、イエローインク組成物よりも明度・彩度の低い色材（顔料）を用いたイエローインク組成物である。そして、「レッド」、「オレンジ」、「グリーン」、「ブルー」、及び「バイオレット」の各インク組成物は、色再現範囲を向上させるために、イエロー、マゼンタ、シアンの中間色を構成する要素として使用されるインク組成物である。

【0047】本発明による好ましいインクセットの態様は、カーボンブラック含有ライトブラックインク組成物にC. I. PB60を添加するものである。ライトブラックインク組成物は、カーボンブラック濃度を低くしてあるので、C. I. PB60を添加することにより、シャドウ部等の淡色領域（灰色領域）の帯黄性を経時的にも安定して修正することができる。

【0048】カーボンブラック含有ライトブラックインク組成物に前記ブルー顔料（特にC. I. PB60）を添加する場合のインクセットにおいては、カーボンブラック含有ブラックインク組成物として、前記ブルー顔料を含有するインク組成物と組合せても、あるいは前記ブルー顔料を含有しないインク組成物と組合せてもよい。

【0049】本発明のインクセットは、カーボンブラッ

10

20

30

40

50



ク濃度が異なる複数のブラックインク組成物を含むことができる。これらの複数のブラックインク組成物の2種以上の組成物に前記ブルー顔料（特にC. I. PB60）を添加することができる。このようなインクセットにおいて、そのインクセットに含まれる任意の2種のブラックインク組成物を比較した場合に、カーボンブラック濃度が低い方のブラックインク組成物におけるカーボンブラック濃度（K1）に対する前記ブルー顔料濃度（P1）の比（ $P1/K1$ ）と、カーボンブラック濃度が高い方のブラックインク組成物におけるカーボンブラック濃度（K2）に対する前記ブルー顔料濃度（P2）の比（ $P2/K2$ ）が、以下の関係式（2）：  

$$P1/K1 > P2/K2 \quad (2)$$
を満足するのが好ましい。

【0050】すなわち、ブラックインク組成物のカーボンブラック濃度が低くなればなるほど、前記の帯黄色性の傾向は増加するので、その帯黄色性を補修するために添加する前記ブルー顔料の必要性は増加する。しかしながら、カーボンブラックの濃度自体も低下しているので、帯黄色性を補修するのに必要な前記ブルー顔料の絶対量が必ずしも増加するわけではない。増加する必要があるのは、カーボンブラック濃度に対して添加する前記ブルー顔料濃度の比率である。

【0051】このように、カーボンブラック濃度が異なる複数のブラックインク組成物を含む本発明のインクセットにおいて、前記ブルー顔料の添加量を調整することにより、シャドー部等の淡色領域（灰色領域）の帯黄性を経時的にも安定して修正することができる。また、カーボンブラック濃度が異なる複数のブラックインク組成物を含む本発明のモノクロカラーインクセットを用いると、優れたグレースケールを作成することができる。

【0052】本発明のインクセットは、ブラックインク組成物が前記ブルー顔料とカーボンブラックとを含有することを除けば、それ以外の点では、従来公知のインクセットと同様に構成することができ、従来公知の各種の記録方法用インクとして利用することができる。好ましいインクセットは、水系であり、特にインクジェット記録用インクセットである。

【0053】また、本発明の記録方法は、インク組成物

の液滴を吐出して、前記液滴を記録媒体に付着させて印刷を行う記録方法であって、本発明のブラックインク組成物及び/又は本発明のインクセットを用いる。ここで、記録方法は、本発明のブラックインク組成物が収容されたインクカートリッジ（複数のブラックインク組成物を含むインクセットの形態においては、各ブラックインク組成物が個別に収容されたインクカートリッジ）を公知のインクジェット記録装置に搭載させて、記録媒体に対して印刷することにより、好適に行うことができる。

【0054】ここで、インクジェット記録装置としては、電気信号に基づいて振動可能な電歪素子が搭載されるとともに、前記電歪素子の振動によって、本発明に係るブラックインク組成物を、又は、本発明に係るインクセットが具備するインクを吐出できるように構成されたインクジェット記録装置が好ましい。

【0055】また、ブラックインク組成物を収容するインクカートリッジ（収容ケース）としては、公知のものを好適に使用することができる。

【0056】また、本発明の記録物は、本発明の記録方法によって印刷されるので、カーボンブラックの帯黄性を修正することができ、色味が良好で、耐光性に優れ、更に空気酸化による変色にも耐えることのできる画像を有する。

【0057】

【実施例】以下、実施例によって本発明を具体的に説明するが、これらは本発明の範囲を限定するものではない。以下の実施例及び比較例で、wt %は重量%である。

【0058】＜実施例1～4＞以下の表1に記載の配合成分を混合し、サンドミル（安川製作所製）中でガラスビーズ〔直径＝1.7mm；混合物の1.5倍量（重量）〕とともに2時間分散させ、実施例1～4のインク組成物を得た。水溶性樹脂としてはスチレン-アクリル酸共重合体（分子量＝15000；酸価＝100）を用いた。

【0059】

【表1】

	実施例			
	1	2	3	4
カーボンブラック	2.5	1.3	0.3	0.7
C. I. ピグメントブルー60	0.2	0.5	0.2	0.4
水溶性樹脂 (分散剤)	1.1	0.7	0.2	0.4
グリセリン	12	16	20	20
エチレングリコール	5	5	9	9
2-ピロリドン	2	4	5	2
トリエタノールアミン	0.9	0.5	0.9	0.9
トリエチレングリコールモノブチルエーテル	6	6	5	
1, 2-ヘキサジオール				3
サーフィノール465	1	1	1	1
プロキセルGXL	0.1	0.2	0.1	0.3
EDTA	0.02	0.02	0.02	0.02
純水	残量	残量	残量	残量

【0060】＜比較例1及び2＞以下の表2に記載の配合成分を用いることを除いて、前記実施例1～4に記載の操作を繰り返して、比較例1及び2のインク組成物を

得た。

【0061】

【表2】

17

18

	比較例	
	1	2
カーボンブラック	1. 65	1. 1
C. I. ピグメントブルー15:3	1. 65	
C. I. ピグメントレッド122	1. 70	
水溶性樹脂(分散剤)		0. 3
ジソオクチルフタレート	0. 5	
グリセリン	10	20
ジエチレングリコール	30	
エチレングリコール		9
2-ピロリドン		2
トリエチレングリコールモノブチルエーテル	7	5
サーフィノール465	1	1
プロキセルGXL	0. 03	0. 1
EDTA		0. 02
純水	残量	残量

## 【0062】＜物性評価＞

## (1) 印刷評価試験

前記実施例1～4並びに比較例1及び2で調製したインク組成物をインクジェットプリンタ(PM-900C; セイコーエプソン株式会社製)の専用カートリッジに充填した。

【0063】出力は720×720dpiで行い、ベタ(デューティー=100%)で印刷した。印刷は、専用記録媒体(光沢フィルム; セイコーエプソン株式会社製)を用い、出力されたパターンは分光光度計(GRE

TAG SPM; GRETAG社製)を用いて測定し、30 CIEで規定されている色差表示法のL\*a\*b\*表色系の座標を求めた。その際の条件は、光源D50、光源フィルタなしで、白色標準は絶対白とし、視野角は2°とした。また、彩度C\*は次の式から求めた。

$$【0064】C* = ((a*)^2 + (b*)^2)^{1/2}$$

色相値の測定結果を表3に示す。

## 【0065】

## 【表3】

	L*	a*	b*	C*
実施例1	10. 31	0. 25	-0. 14	0. 29
実施例2	22. 50	1. 41	0. 78	1. 61
実施例3	56. 11	-1. 29	1. 38	1. 89
実施例4	41. 22	-1. 21	0. 71	1. 40
比較例1	13. 44	-0. 75	0. 35	0. 38
比較例2	37. 95	3. 11	9. 57	10. 1

【0066】上記表3に示すように、実施例1～4及び比較例1については色相値がほぼ無彩色である $a^* = 0$ 及び $b^* = 0$ に近く、彩度 $C^*$ も3以下程度であり、補色添加の効果が認められる。

【0067】一方、比較例2は色相が黄色味を示す $b^*$ 値が大きく、本来必要な無彩色からは大きくずれている結果となった。

#### 【0068】(2) 耐オゾン性評価

出力した印刷物をオゾン発生装置（オゾンウエザオメーターOMS-H；スガ試験機株式会社製）を用いて、耐

変色評価を行った。

【0069】評価は槽内温度40℃、200ppmのオゾン濃度に管理し、暴露時間は3時間に行った。結果を表4に示す。評価結果を下記のとおり分類した。

A：色相の変化が暴露前後で $\Delta E$ で5未満であった。

B：色相の変化が暴露前後で $\Delta E$ で5以上10未満であった。

C：色相の変化が暴露前後で $\Delta E$ で10以上であった。

#### 【0070】

【表4】

	評価
実施例1	A
実施例2	A
実施例3	A
実施例4	A
比較例1	C
比較例2	A

#### 【0071】(3) グレースケールの出力

実施例1～3で調製したインク組成物をインクジェットプリンタ（MC2000C；セイコーエプソン株式会社製）の専用カートリッジに、次のように充填した。

(イ) MC2000Cのインクカートリッジのブラック

インク室に実施例1のインク組成物を充填した。

(ロ) MC2000Cのインクカートリッジのシアンインク室に実施例2のインク組成物を充填した。

(ハ) MC2000Cのインクカートリッジのマゼンタインク室に実施例3のインク組成物を充填した。

【0072】出力は、実施例1～3のインク組成物のみを用いて専用記録媒体（光沢フィルム；セイコーエプソン株式会社製）に吐出し、白から黒へのグレーの階調パターン（グレースケール）を、階調を16等分に分割して出力した。出力はそれぞれのインク組成物を適宜、パターンデータに従って各インク組成物の吐出量を分配して行った。出力されたパターンを測色し、 $a^*$ 、 $b^*$ 座標をプロットした。結果を、図1に示す。

【0073】一方、比較用として、前記インクジェットプリンタ（MC2000C）を用い、そのプリンタMC2000Cに標準搭載されたプリンタドライバを通じて、且つ純正のインクセット〔ブラックインク：型番MC1BK01及びカラーインクセット（5色）：型番MC5CL01、いずれもセイコーエプソン株式会社製〕を用いて、同様のパターンを出力し、出力されたパターンを測色し、 $a^*$ 、 $b^*$ 座標をプロットした。結果を、図2に示す。

【0074】図1から明らかなとおり、本発明のブラックインク組成物を用いた場合は、ほぼ $a^* = 0$ 、 $b^* = 0$ の原点に近いカーブを示した。一方、比較用の図2においては、カラーシフトが認められた。従って、前記ブルー顔料添加の効果を確認することができた。なお、図1及び図2において横軸は $a^*$ 座標であり、縦軸は $b^*$ 座標である。

#### 【0075】

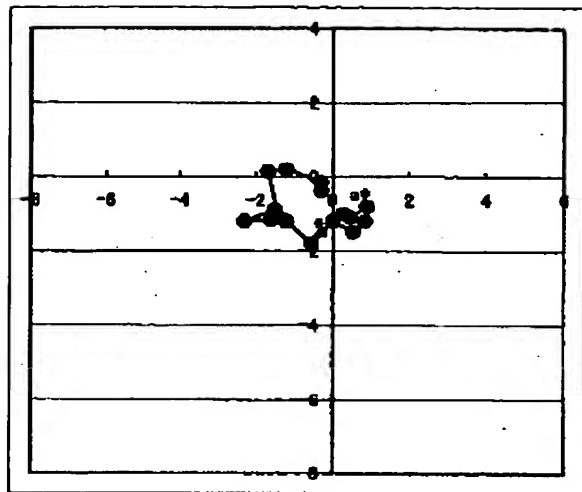
【発明の効果】本発明によれば、経時的にも安定してカーボンブラックの帯黄性を修正することができるブラックインク組成物及びインクセットが提供される。

#### 【図面の簡単な説明】

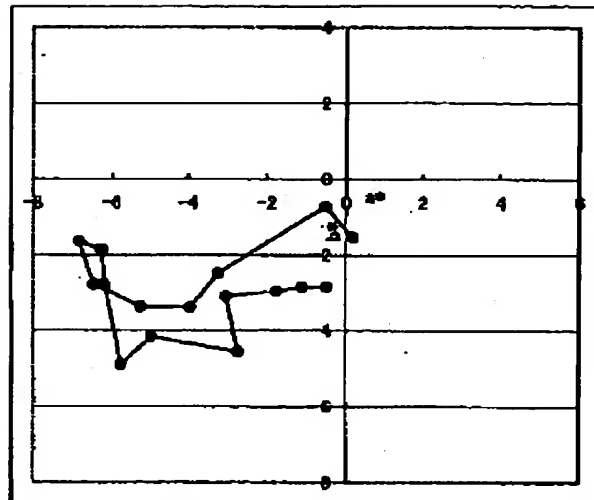
【図1】本発明のブラックインクセットを用いて作成したグレースケールに関して、 $L^*a^*b^*$ 表色系の $a^*$ 座標及び $b^*$ 座標を示すグラフである。

【図2】比較用のフルカラーインクセットを用いて作成したグレースケールに関して、 $L^*a^*b^*$ 表色系の $a^*$ 座標及び $b^*$ 座標を示すグラフである。

【図1】



【図2】



フロントページの続き

Fターム(参考) 2C056 EA13 FC01  
 2H086 BA53 BA55 BA59 BA62  
 4J039 AB08 AD01 AD02 AD03 AD06  
 AD08 AD09 AD10 AD11 AD13  
 AD14 AD23 BA04 BC09 BC17  
 BC69 BE22 CA03 CA04 CA06  
 CA07 EA19 GA24

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-256193

(43)Date of publication of application : 19.09.2000

(51)Int.Cl.

A61K 31/437  
A01N 43/90  
A61P 15/16  
A61P 43/00  
// C07D471/04

(21)Application number : 11-067214

(71)Applicant : SAGAMI CHEM RES CENTER

(22)Date of filing : 12.03.1999

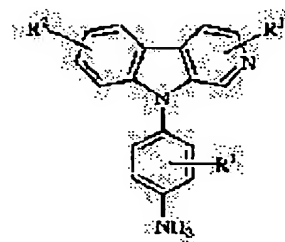
(72)Inventor : WAKABAYASHI KEIJI  
TOTSUKA YUKARI

## (54) AGENT FOR INHIBITING FORMATION OF SPERM AND AGENT FOR CONTROLLING INJURIOUS ANIMAL

(57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain the subject inhibitor which exhibits a remarkable sperm formation-inhibiting activity, brings about the lowering of breeding rate and is useful for controlling injurious animals by including a specific pyridoindole derivative.

**SOLUTION:** This inhibitor contains a 9H-pyrido[3,4-b]indole derivative of the formula (R<sup>1</sup>-R<sup>3</sup> are each H or a lower alkyl). The compound of the formula is obtained by condensing norharman with a substituted p-halonitrobenzene which may have a group and then reducing the obtained 9-(4'-nitrophenyl)-9H-pyrido[3,4-b]indole. The inhibitor is administered in the form of an oral administration preparation such as tablets, capsules, powders, granules, or liquid medicines or a perenteral administration preparation such as a rectal administration preparation. The compound is administered at a daily dose of about 1-500 mg/kg, preferably 10-200 mg/kg, with one or several portions.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision]

of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

\* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

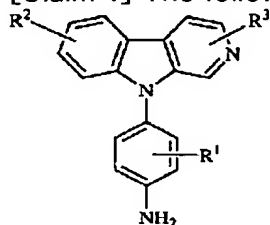
---

CLAIMS

---

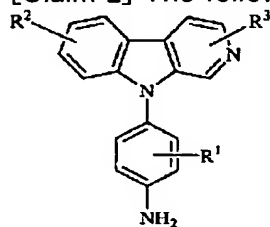
[Claim(s)]

[Claim 1] The following general formula [Formula 1]



(— the inside of a formula, and R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> and R<sup>3</sup> — each — they are a hydrogen atom or a low-grade alkyl group independently Spermatogenesis inhibitor which makes an active principle the 9H-[3 and 4-pyrid b] Indore derivative expressed with ).

[Claim 2] The following general formula [Formula 2]



(— the inside of a formula, and R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> and R<sup>3</sup> — each — they are a hydrogen atom or a low-grade alkyl group independently Noxious-animal inhibitor which makes an active principle the 9H-[3 and 4-pyrid b] Indore derivative expressed with ).

---

[Translation done.]



**\* NOTICES \***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**DETAILED DESCRIPTION**

---

**[Detailed Description of the Invention]**

[0001]

[The technical field to which invention belongs] this invention relates to the spermatogenesis inhibitor and detrimental animal inhibitor which make an active principle the 9H-[3 and 4-pyrid b] Indore derivative.

[0002]

[Description of the Prior Art] 9H-pyrid [3 and 4-b] Indore (NORUHARUMAN) is matter which generates by heating of a tryptophan and exists widely in environment, such as smoke, heated food of tobacco. When this compound and aniline were made to react to the bottom of S9 mix existence recently, it was reported that 9-(4'-aminophenyl's)-9H-[3 and 4-pyrid b] Indore's (aminophenyl NORUHARUMAN's) generating and this compound have mutation (Calcinogenesis, 9 (11), 1995-2000 (1998)). However, it is not known that this compound and its derivative show spermatogenesis inhibitory action.

[0003]

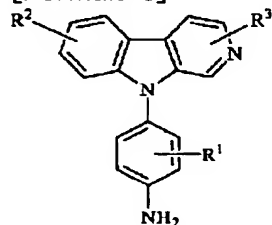
[Problem(s) to be Solved by the Invention] this invention aims at offering a new spermatogenesis inhibitor and a detrimental animal inhibitor.

[0004]

[Means for Solving the Problem] The 9H-[3 and 4-pyrid b] Indore derivative finds out that the outstanding spermatogenesis inhibitory action is shown, and this invention persons came to complete this invention, as a result of inquiring in order to attain the above-mentioned technical problem.

[0005] That is, this invention is the following general formula. [0006]

[Formula 3]



[0007] (— the inside of a formula, and R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> and R<sub>3</sub> — each — they are a hydrogen atom or a low-grade alkyl group independently The spermatogenesis inhibitor and detrimental animal inhibitor which make an active principle the 9H-[3 and 4-pyrid b] Indore derivative expressed with) are offered.

[0008] In this invention, a low-grade alkyl group means the alkyl group of the carbon numbers 1-6 of the shape of a straight chain, and the letter of branching, for example, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, an isopropyl machine, a butyl, a pentyl machine, a hexyl machine, etc. can be mentioned.

[0009] this invention — an active principle — it is — the above — a general formula — expressing — having — nine — H — — — pyrid — [— three — four — — — b —] — Indore —

a derivative — NORUHARUMAN — a substituent — having — \*\*\*\* — p — — — a halo — a nitrobenzene — condensing — making — obtaining — having — nine — — (4'-nitrophenyl) — — — nine — H — — — pyrid — [— three — four — — —

[0010] The spermatogenesis inhibitor of this invention contains the 9H-[3 and 4-pyrid b] Indore derivative expressed with the above-mentioned general formula as an active principle, and various kinds of forms can be chosen as a medication form, for example, parenteral administration agents, such as oral agents, such as a tablet, a capsule, powder, a granule, or liquid medicine, and a rectum medication agent, etc. are mentioned.

[0011] A solid tablet can also be manufactured using a suitable additive, although it can also manufacture as a form of a tablet, a capsule, a granule, or powder as it is. As such an additive, for example Saccharides, such as a lactose or grape sugar, Mineral salt, such as fatty acids, for example, magnesium aluminometasilicate, such as starch, for example, stearin acid etc., or phosphoric-anhydride calcium, For example, synthetic macromolecules, such as a polyvinyl pyrrolidone or a polyalkylene glycol, For example, fatty-acid salts, such as a calcium stearate or a magnesium stearate, For example, alcohols, such as a stearyl alcohol or benzyl alcohol, For example, additives usually used, such as synthetic cellulose, such as a methyl cellulose, an ethyl cellulose, a carboxymethyl cellulose, or a hydroxypropyl methyl cellulose, other water, gelatin, talc, vegetable oil, and gum arabic, are mentioned.

[0012] A liquefied tablet uses the suitable additive usually used in liquefied tablets, such as oils of the vegetable origin, such as water, alcohols or soybean oil, a peanut oil, or sesame oil, and is manufactured as forms, such as suspension and a syrup agent.

[0013] What is necessary is just to cover with a gelatin film, after warming and fusing bases for \*\* agents, such as TORI of an active ingredient and cacao butter, and a fatty acid, JI and a monoglyceride, and a polyethylene glycol, slushing into a mold, and cooling or dissolving an active ingredient in a polyethylene glycol, soybean oil, etc., in order to manufacture a rectum medication agent.

[0014] Although the desirable amount of medication of the compound of this invention changes with states of the age of the kind of blended constituent, application frequency, and the person prescribed a medicine for the patient, weight, and the skin etc., it is desirable for about 1–500mg /to be [ kg ] 10mg – 200mg/kg preferably, and to usually, prescribe a medicine for the patient in 1 time or several steps for one day.

[0015] As for the detrimental animal inhibitor of this invention, it is desirable to make it the animal which is a form as it is, is the form mixed with other support, the excipient, and/or the additive, for example, should form an active principle the shape of a liquid and granulation, a grain, a tablet, a capsule, and in the shape of a paste, and should control it in addition to food take in. Although the content in the food of an active principle changes also with kinds of an object animal and food, it is about 0.001 – 1%. Although you may be what thing as long as it is the animal which needs control as an object animal, a field rat, a mole, a stray dog, a bear, an antelope, \*\*\*\*, a sparrow, a crow, etc. can be mentioned, for example.

[0016]

[Example] Hereafter, an example explains this invention in detail. However, this invention is not limited to an example.

[0017] an example 1 — 12 usually bred 10-weeks old F344 male rats — 9-(4'-aminophenyl)-forcible medication of 9H1 pyrid [3 and 4-b] Indore (aminophenyl NORUHARUMAN) 100mg/the kg in single \*\*\*\* was carried out Three animals were respectively slaughtered after medication on the 5th and each 6th on the 3rd on the 1st, and change of the testis was observed.

Consequently, one day after medication, the vacuolation of Sertoli cell was accepted and, three days after, the increase and spermatocyte death of Sertoli cell which carried out vacuolation appeared. Furthermore, multinucleated giant cell-ization of a circular spermatid was accepted with the increase in Sertoli cell which carried out vacuolation five days after and the advent of spermatocyte death. Six days after, the ablation and disappearance of a reproductive cell which denaturalized were observed.

[0018]

[Effect of the Invention] The spermatogenesis inhibitor of this invention shows remarkable

spermatogenesis prevention activity. Moreover, the noxious-animal inhibitor of this invention brings about decline in reproductive rate, and is useful to control of a noxious animal.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

**TECHNICAL FIELD**

---

[The technical field to which invention belongs] this invention relates to the spermatogenesis inhibitor and detrimental animal inhibitor which make an active principle the 9H-[3 and 4-pyrid b] Indore derivative.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

.....  
**PRIOR ART**  
.....

[Description of the Prior Art] 9H-pyrid [3 and 4-b] Indore (NORUHARUMAN) is matter which generates by heating of a tryptophan and exists widely in environment, such as smoke, heated food of tobacco. When this compound and aniline were made to react to the bottom of S9 mix existence recently, it was reported that 9-(4'-aminophenyl's)-9H-[3 and 4-pyrid b] Indore's (aminophenyl NORUHARUMAN's) generating and this compound have mutation (Calcinogenesis, 9 (11), 1995-2000 (1998)). However, it is not known that this compound and its derivative show spermatogenesis inhibitory action.

.....  
[Translation done.]

**\* NOTICES \***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

**EFFECT OF THE INVENTION**

---

[Effect of the [Invention] The spermatogenesis inhibitor of this invention shows remarkable spermatogenesis prevention activity. Moreover, the detrimental animal inhibitor of this invention brings about decline in reproductive rate, and is useful to control of a detrimental animal.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

**TECHNICAL PROBLEM**

---

[Problem(s) to be Solved by the Invention] this invention aims at offering a new spermatogenesis inhibitor and a detrimental animal inhibitor.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

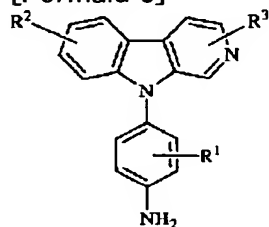
MEANS

---

[Means for Solving the Problem] The 9H-[3 and 4-pyrid b] Indore derivative finds out that the outstanding spermatogenesis inhibitory action is shown, and this invention persons came to complete this invention, as a result of inquiring in order to attain the above-mentioned technical problem.

[0005] That is, this invention is the following general formula. [0006]

[Formula 3]



[0007] (— the inside of a formula, and R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> and R<sub>3</sub> — each — they are a hydrogen atom or a low-grade alkyl group independently The spermatogenesis inhibitor and noxious-animal inhibitor which make an active principle the 9H-[3 and 4-pyrid b] Indore derivative expressed with) are offered.

[0008] In this invention, a low-grade alkyl group means the alkyl group of the carbon numbers 1–6 of the shape of a straight chain, and the letter of branching, for example, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, an isopropyl machine, a butyl, a pentyl machine, a hexyl machine, etc. can be mentioned.

[0009] this invention — an active principle — it is — the above — a general formula — expressing — having — nine — H — — — pyrid — [— three — four — — — b —] — [Indore — a derivative — NORUHARUMAN — a substituent — having — \*\*\*\* — p — — — a halo — a nitrobenzene — condensing — making — obtaining — having — nine — — (4'-nitrophenyl) — — — nine — H — — — pyrid — [— three — four — — —

[0010] The spermatogenesis inhibitor of this invention contains the 9H-[3 and 4-pyrid b] Indore derivative expressed with the above-mentioned general formula as an active principle, and various kinds of gestalten can be chosen as a medication gestalt, for example, parenteral administration agents, such as oral agents, such as a tablet, a capsule, powder, a granule, or solution, and a rectum medication agent, etc. are mentioned.

[0011] A solid tablet can also be manufactured using a suitable additive, although it can also manufacture as a gestalt of a tablet, a capsule, a granule, or powder as it is. As such an additive, for example Saccharides, such as a lactose or grape sugar, Mineral salt, such as fatty acids, for example, magnesium aluminometasilicate, such as starch, for example, stearin acid etc., or phosphoric-anhydride calcium, For example, synthetic macromolecules, such as a polyvinyl pyrrolidone or a polyalkylene glycol, For example, fatty-acid salts, such as a calcium stearate or a magnesium stearate, For example, alcohols, such as a stearyl alcohol or benzyl alcohol, For example, additives usually used, such as synthetic cellulosics, such as a methyl cellulose, an ethyl cellulose, a carboxymethyl cellulose, or hydroxypropyl methylcellulose, other water, gelatin,



talc, vegetable oil, and gum arabic, are mentioned.

[0012] Liquid preparations uses the suitable additive usually used in liquid preparations, such as oils of the vegetable origin, such as water, alcohols or soybean oil, a peanut oil, or sesame oil, and is manufactured as gestalten, such as suspension and syrup.

[0013] What is necessary is just to cover with the gelatin film, after warming and fusing bases for suppositories, such as TORI of an active ingredient and cacao butter, and a fatty acid, JI and a monoglyceride, and a polyethylene glycol, slushing into a mold, and cooling or dissolving an active ingredient in a polyethylene glycol, soybean oil, etc., in order to manufacture a rectum medication agent.

[0014] Although the desirable dose of the compound of this invention changes with states of the age of the kind of blended constituent, application frequency, and the person prescribed a medicine for the patient, weight, and the skin etc., it is desirable for about 1–500mg /to be [ kg ] 10mg – 200mg/kg preferably, and to usually, prescribe a medicine for the patient in 1 time or several steps for one day.

[0015] As for the noxious–animal inhibitor of this invention, it is desirable to make it the animal which is a gestalt as it is, is the gestalt mixed with other support, the excipient, and/or the additive, for example, should form an active principle the shape of a liquid and granulatio, a grain, a tablet, a capsule, and in the shape of a paste, and should control it in addition to food take in. Although the content in the food of an active principle changes also with kinds of an object animal and food, it is about 0.001 – 1%. Although you may be what thing as long as it is the animal which needs control as an object animal, a wild rat, a mole, a stray dog, a bear, an antelope, \*\*\*\*, a sparrow, a crow, etc. can be mentioned, for example.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

EXAMPLE

---

[Example] Hereafter, an example explains this invention in detail. However, this invention is not limited to an example.

[0017] an example 1 — 12 usually bred 10-weeks old F344 male rats — 9-(4'-aminophenyl)-forcible medication of 9H1 pyrid [3 and 4-b] Indore (aminophenyl NORUHARUMAN) 100mg/the kg in single \*\*\*\* was carried out Three animals were respectively slaughtered after medication on the 5th and each 6th on the 3rd on the 1st, and change of the testis was observed.

Consequently, one day after medication, the vacuolation of Sertoli cell was accepted and, three days after, the increase and spermatocyte death of Sertoli cell which carried out vacuolation appeared. Furthermore, multinucleated giant cell-ization of a circular spermatid was accepted with the increase in Sertoli cell which carried out vacuolation five days after and the advent of spermatocyte death. Six days after, the ablation and disappearance of a reproductive cell which denaturalized were observed.

---

[Translation done.]